

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

2879

In re the Application of

Katsuyuki MORII et al.

Application No.: 09/994,816

Filed: November 28, 2001

For: ORGANIC ELECTRO-LUMINESCENT DEVICE, MANUFACTURING
METHOD FOR THE SAME, AND ELECTRONIC EQUIPMENT

Group Art Unit: 2879

Docket No.: 111219

RECEIVED
JAN 30 2002
TC 2800 MAIL ROOMCLAIM FOR PRIORITYDirector of the U.S. Patent and Trademark Office
Washington, D.C. 20231

Sir:

The benefit of the filing dates of the following prior foreign applications filed in the following foreign country(ies) is hereby requested for the above-identified patent application and the priority provided in 35 U.S.C. §119 is hereby claimed:

Japanese Patent Application No. 2000-361559, filed November 28, 2000; and
Japanese Patent Application No. 2001-353682, filed November 19, 2001.

In support of this claim, certified copies of said original foreign applications:

 X are filed herewith.

 were filed on in Parent Application No. filed .

 will be filed at a later date.

RECEIVED
JAN 30 2002
TC 2800 MAIL ROOM

It is requested that the file of this application be marked to indicate that the requirements of 35 U.S.C. §119 have been fulfilled and that the Patent and Trademark Office kindly acknowledge receipt of these documents.

Respectfully submitted,

James A. Oliff
Registration No. 27,075

Eric D. Morehouse
Registration No. 38,565

JAO:EDM/gam

Date: January 25, 2002

OLIFF & BERRIDGE, PLC
P.O. Box 19928
Alexandria, Virginia 22320
Telephone: (703) 836-6400

DEPOSIT ACCOUNT USE
AUTHORIZATION
Please grant any extension
necessary for entry;
Charge any fee due to our
Deposit Account No. 15-0461



日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年11月28日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-361559

出 願 人

Applicant(s):

セイコーエプソン株式会社

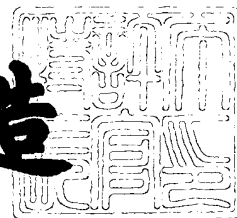
RECEIVED
JAN 30 2002
TC 2800 MAIL ROOM

RECEIVED
JAN 30 2002
TC 2800 MAIL ROOM

2001年12月14日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3109164

【書類名】 特許願

【整理番号】 J0082745

【提出日】 平成12年11月28日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H05B 33/00

【発明者】

【住所又は居所】 長野県諏訪市大和3丁目3番5号 セイコーエプソン株式会社内

【氏名】 森井 克行

【発明者】

【住所又は居所】 長野県諏訪市大和3丁目3番5号 セイコーエプソン株式会社内

【氏名】 関 俊一

【特許出願人】

【識別番号】 000002369

【氏名又は名称】 セイコーエプソン株式会社

【代理人】

【識別番号】 100093388

【弁理士】

【氏名又は名称】 鈴木 喜三郎

【連絡先】 0 2 6 6 - 5 2 - 3 1 3 9

【選任した代理人】

【識別番号】 100095728

【弁理士】

【氏名又は名称】 上柳 雅誉

【選任した代理人】

【識別番号】 100107261

【弁理士】

【氏名又は名称】 須澤 修

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 013044

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9711684

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 有機 E L 装置および有機 E L 装置の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 有機 E L 材料を含むインク組成物 2 種類以上をインク吐出法により同一基板上に近接して吐出製膜する工程を有する有機 E L 装置の製造方法であって、前記 2 種類以上のインク組成物の基板に対する吐出順序をインク組成物を構成する溶質成分数が少ない順とし吐出製膜することを特徴とする有機 E L 装置の製造方法。

【請求項 2】 連続する 2 回のインク組成物の吐出において、前回の吐出したインク組成物の液滴が乾燥後、次のインク組成物の吐出を行うことを特徴とする請求項 1 記載の有機 E L 装置の製造方法。

【請求項 3】 前記有機 E L 材料が発光材料であることを特徴とする請求項 1 又は 2 記載の有機 E L 装置の製造方法。

【請求項 4】 請求項 1 乃至 3 記載のいずれか 1 項記載の方法を用いて得られた有機 E L 装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

ディスプレイ、表示光源などに用いられる電氣的発光素子を備えた有機エレクトロルミネッセンス（以下 E L と記す）装置およびその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

近年液晶ディスプレイに替わる自発発光型ディスプレイとして有機物を用いた発光素子の開発が加速している。発光層に有機物を用いた発光素子を備えた有機エレクトロルミネッセンス（本明細書を通じて E L と記す）装置としては、A p p l . P h y s . L e t t . 5 1 (1 2) 、 2 1 S e p t e m b e r 1 9 8 7 の 9 1 3 ページから示されているように低分子を蒸着法で成膜する方法と、A p p l . P h y s . L e t t . 7 1 (1) 、 7 J u l y 1 9 9 7 の 3 4 ページから示されているように高分子を塗布する方法が主に報告されている。

【 0 0 0 3 】

カラー化の手段としては低分子系材料の場合、マスク越しに異なる発光材料を所望の画素上に蒸着し形成する方法が行われている。一方、高分子系材料については、微細かつ容易にパターニングができることからインクジェット法を用いたカラー化が注目されている。インクジェット法による有機EL素子の形成としては以下の公知例が知られている。特開平7-235378、特開平10-12377、特開平10-153967、特開平11-40358、特開平11-54270、特開平11-339957である。

【 0 0 0 4 】

また、素子構造という観点からは、発光効率、耐久性を向上させるために、正孔注入／輸送層を陽極と発光層の間に形成することが多い（Appl. Phys. Lett. 51, 21 September 1987の913ページ）。従来、バッファ層や正孔注入／輸送層としては導電性高分子、例えばポリチオフェン誘導体やポリアニリン誘導体（Nature, 357, 477, 1992）を用い、スピコート等の塗布法により膜を形成する。低分子系材料においては正孔注入／輸送層として、フェニルアミン誘導体を蒸着で形成することが報告されている。

【 0 0 0 5 】

【発明が解決しようとする課題】

有機薄膜材料を無駄にせず、簡便にかつ微細パターニング製膜する手段としてインクジェット方式は大変有効である。

【 0 0 0 6 】

しかしながら、インクジェット法による薄膜製膜において用いられている液滴は極めて小さく蒸発時間が短い。そのため、液滴より蒸発した溶媒分子が基板近傍から十分に拡散される前に飽和に達してしまい、すでに製膜された薄膜さえも再溶解させてしまう。

【 0 0 0 7 】

本発明は、上記問題点に鑑みてなされたもので、その課題とするところは、相分離のない均一な有機EL薄膜を得るための、インクジェット法による有機EL

装置の製造方法ならびに有機 E L 装置を提供することにある。

【 0 0 0 8 】

【課題を解決するための手段】

本発明は、有機 E L 材料を含むインク組成物 2 種類以上をインク吐出法により同一基板上に近接して吐出製膜する工程を有する有機 E L 装置の製造方法であって、前記 2 種類以上のインク組成物の基板に対する吐出順序をインク組成物を構成する溶質成分数が少ない順として、吐出製膜することを特徴とする。

上記方法において、好ましくは、連続する 2 回のインク組成物の吐出において、前回の吐出したインク組成物の液滴が乾燥後、次のインク組成物の吐出を行うことを特徴とする。

【 0 0 0 9 】

また、上記方法において、好ましくは、前記有機 E L 材料が発光材料であることを特徴とする。

【 0 0 1 0 】

更に、本発明によれば、上記方法を用いて得られた有機 E L 装置が提供される。

【 0 0 1 1 】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施形態について詳細に説明する。

【 0 0 1 2 】

インクジェット方式による有機 E L 装置の製造方法とは、例えば、素子構造を構成する正孔注入／輸送材料ならびに発光材料を溶媒に溶解または分散させたインク組成物を、インクジェットヘッドから吐出させて透明電極基板上にパターンニング塗布し、正孔注入／輸送層ならびに発光材層をパターン形成する方法である。

【 0 0 1 3 】

図 1 はインクジェット方式による有機 E L 素子の製造に用いられる基板の断面図を示したものである。ガラス基板 1 0 あるいは T F T 付きの基板上に I T O 1 1 が透明画素電極としてパターンニングされ、画素を隔てる領域に S i O₂ 1 2

と撥インク性あるいは撥インク化された有機物からなる隔壁（以下バンクと称する）13を設けた構造である。バンクの形状つまり画素の開口形は、円形、楕円、四角、ストライプいずれの形状でも構わないが、インク組成物には表面張力があるため、四角形の角部は丸みを帯びているほうが好ましい。

【0014】

図2～6を参照して、インクジェット方式による正孔注入／輸送層及び発光層の積層構造を素子構造として有する有機EL装置の製造工程を示す。

【0015】

図1に示した構造の基板に対して、正孔注入／輸送材料を含むインク組成物15をインクジェットヘッド14から吐出し、パターン塗布する（図2）。塗布後、溶媒除去および／または熱処理、あるいは窒素ガスなどのフローにより正孔注入／輸送層16を形成する（図3）。

【0016】

続いて発光材料を含むインク組成物17を正孔注入／輸送層16上に塗布し（図4）、溶媒除去および／または熱処理あるいは窒素ガスなどのフローにより発光層18を形成する（図5）。

【0017】

Ca、Mg、Ag、Al、Li等の金属を用い、蒸着法およびスパッタ法等により陰極19を形成する。さらに素子の保護を考え、エポキシ樹脂、アクリル樹脂、液状ガラス等により封止層20を形成し（図6）、有機EL装置が得られる。

【0018】

インクジェット法による膜形成においては、その液滴が極端に小さく蒸発速度が速いため、近傍の塗布膜を再溶解させることがある。特に、溶質成分が複数の場合には、それが原因で相分離を起こす。

【0019】

そこで、本発明では、再溶解の影響を最大限に軽減するために、塗布順序を、そのインク（組成物）に含まれる溶質の成分数の少ない順にする。

【0020】

以下、比較例、実施例を参照して本発明を更に具体的に説明するが、本発明はこれらに制限されるものではない。

【 0 0 2 1 】

下記の例では、図 1 に示した構造の基板を用いた。具体的には I T O 1 1 がパターニングされたガラス基板 1 0 上にフォトリソグラフィーにより、バンクとしてのポリイミド 1 3 および $S i O_2$ 1 2 の積層体を形成したものである。バンク径 ($S i O_2$ の開口径 (平面での開口径)) は $28 \mu m$ 、高さが $2 \mu m$ である。ポリイミドバンクの開口 (平面での開口径) は $44 \mu m$ である。これらの画素が $70.5 \mu m$ ピッチで配置されている基板である。

【 0 0 2 2 】

(比較例)

続いて、図 1、図 7 を参照して、基準となる比較例における有機 EL 装置の製造工程について説明する。

【 0 0 2 3 】

正孔注入／輸送材料インク組成物を塗布する前に、図 1 に示す基板において、大気圧プラズマ処理によりポリイミドバンク 1 3 を撥インク処理した。大気圧プラズマ処理の条件は、大気圧下で、パワー $300 W$ 、電極－基板間距離 $1 mm$ 、酸素プラズマ処理では、酸素ガス流量 $80 c c m$ 、ヘリウムガス流量 $10 S L M$ 、テーブル搬送速度 $10 mm/s$ で行い、続けて $C F_4$ プラズマ処理では、 $C F_4$ ガス流量 $100 c c m$ 、ヘリウムガス流量 $10 S L M$ 、テーブル搬送速度 $5 mm/s$ で行った。

【 0 0 2 4 】

正孔注入／輸送層用インク組成物として表 1 に示したものを調製した。

【 0 0 2 5 】

【表 1】

正孔注入／輸送層用インク組成物

組成物	材料名	含有量 (wt%)
正孔注入／輸送材 料	バイロン P	11.08
	ポリスチレンスルホン酸	1.44
極性溶媒	イソプロピルアルコール	10
	N-メチルピロリドン	27.48
	1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン	50

【0026】

基板の表面処理後、表 1 に示した正孔注入／輸送層用インク組成物をインクジェットプリント装置のヘッド（エプソン社製 MJ-930C）から 15 p l 吐出しパターン塗布。真空中（1 t o r r）、室温、20 分という条件で溶媒を除去した。続けて、同じ正孔注入／輸送層用インク組成物を 15 p l 吐出しパターン塗布した。真空中（1 t o r r）、室温、20 分という条件で溶媒を除去し、大気中、200℃（ホットプレート上）、10 分の熱処理により正孔注入／輸送層を形成した。これにより、図 7 に示す膜厚 50 n m の平坦な正孔注入／輸送層 26 を得た。

【0027】

続いて、発光層用インク組成物として、表 2 および表 3 に示したものを調製した（これらインク組成中で使用する化合物（1～3）の構造を併記する）。

【0028】

【表 2】

発光層(緑)インク組成物

組成物	材料名	組成量
発光層材料	化合物1	0.76 g
	化合物2	0.20 g
	化合物3	0.04 g
溶媒	1, 2, 3, 4-テトラメチルベンゼン	100 ml

【0029】

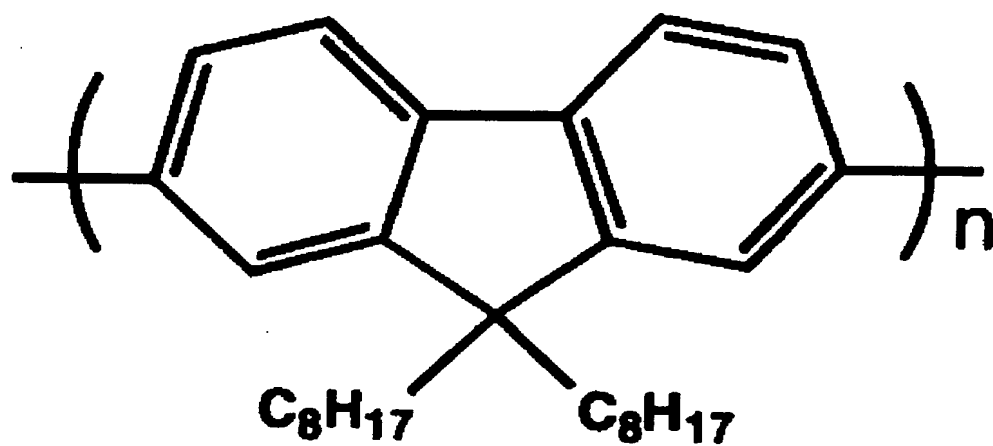
【表 3】

発光層(青)インク組成物

組成物	材料名	組成量
発光層材料	化合物1	1.00 g
溶媒	1, 2, 3, 4-テトラメチルベンゼン	100 ml

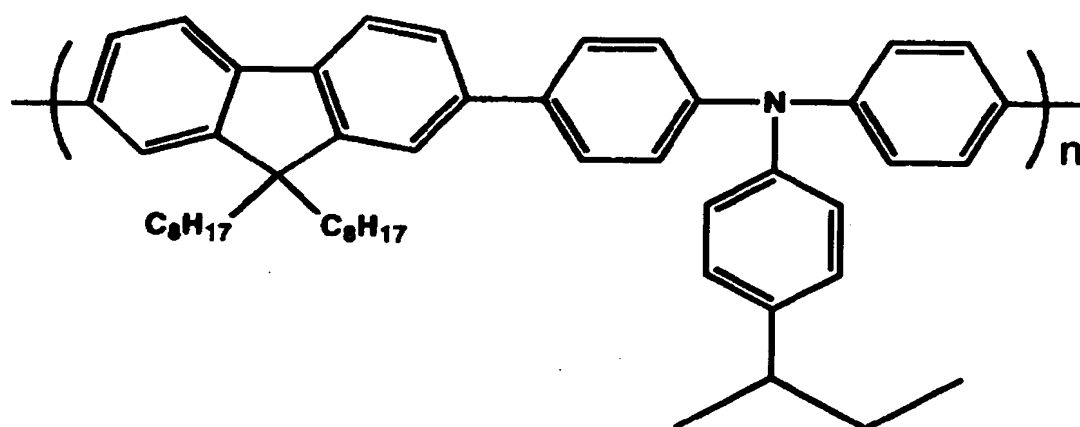
【0030】

【化 1】



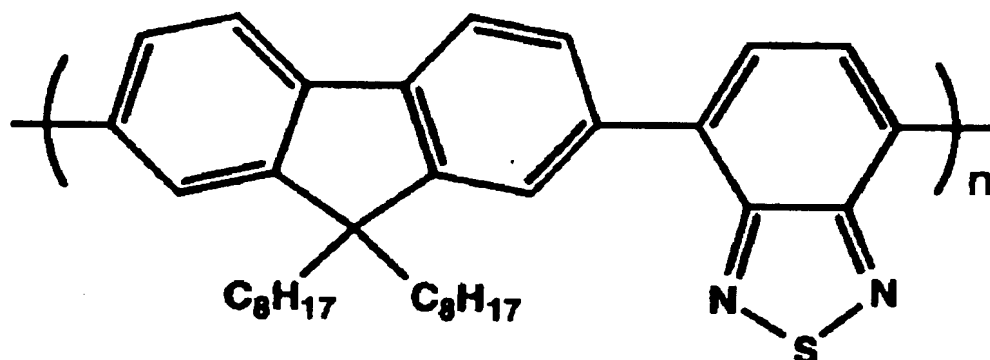
化合物 1

【化 2】



化合物 2

【化 3】



化合物 3

表 2 に示した 1 % (w t / v o l) 濃度の発光層用インク組成物をインクジェットプリント装置のヘッド 2 9 (エプソン社製 M J - 9 3 0 C) から、N₂ガスをフローしながら 2 0 p l 吐出しパターン製膜し、緑色発光層 2 7 を得た。

【 0 0 3 1】

次に、表 3 に示した 1 % (w t / v o l) 濃度の発光層用インク組成物 2 8 を、図 7 に示すように N₂ガスをフローしながらヘッド 2 9 より 7 0 . 5 μ m 離れた隣の画素に供給し 2 0 p l パターン塗布した。これらにより、青色発光層および緑色発光層を得た。

【 0 0 3 2】

緑色発光層 2 7 (表 2 の吐出製膜物) の蛍光スペクトルを測定した。結果を図 8 (A) に示す。当該緑色発光層は、蛍光スペクトルからも示されるように斑のある水色発光を示した。

【 0 0 3 3】

続いて、陰極として、C a を蒸着で 2 0 n m、A l をスパッタで 2 0 0 n m で形成し、最後にエポキシ樹脂により封止を行った。

【 0 0 3 4】

(実施例)

正孔注入／輸送層までは、上記比較例と同様に形成した。

【 0 0 3 5 】

発光層用インク組成物として、上記表 2 および表 3 に示したものを調製した。

【 0 0 3 6 】

表 3 に示した 1 % (w t / v o l) 濃度の発光層用インク組成物をインクジェットプリント装置のヘッド (エプソン社製 M J - 9 3 0 C) から、N₂ガスをフローしながら 2 0 p l 吐出しパターン製膜した。即ち、本例では、図 7 に示す工程において、層 2 7 を青色発光層として得た。

【 0 0 3 7 】

次に、図 7 に示すように表 2 に示した 1 % (w t / v o l) 濃度の発光層用インク組成物 (本例ではインク組成物 2 8 が緑色発光層用インクとなる) を、N₂ガスをフローしながら 7 0 . 5 μ m 離れた隣の画素に 2 0 p l パターン塗布した。即ち、実施例 1 の順序とは異なる順序で発光層の吐出製膜を行った。これにより、緑色および青色発光層を得た。

【 0 0 3 8 】

緑色発光層 (表 2 の吐出製膜物) の蛍光スペクトルを測定した。結果を図 8 (B) に示す。

【 0 0 3 9 】

陰極として、C a を蒸着で 2 0 n m 、 A l をスパッタで 2 0 0 n m で形成し、最後にエポキシ樹脂により封止を行った。

【 0 0 4 0 】

得られた素子構造では蛍光スペクトルに示したように均一な緑色発光を示した。即ち、本発明の方法を採用したことで多成分を有するインク組成物を用いた発光層の発光特性が良好となった。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の実施形態に係る有機 E L 装置の製造方法に使用される基板の構造を示す断面図。

【図 2】

本発明の実施形態に係る有機 E L 装置の製造方法の工程を示す断面図。

【図 3】

本発明の実施形態に係る有機 E L 装置の製造方法の工程を示す断面図。

【図 4】

本発明の実施形態に係る有機 E L 装置の製造方法の工程を示す断面図。

【図 5】

本発明の実施形態に係る有機 E L 装置の製造方法の工程を示す断面図。

【図 6】

本発明の実施形態に係る有機 E L 装置の製造方法の工程を示す断面図。

【図 7】

本発明の比較例及び実施例に係る有機 E L 装置の製造方法の工程を示す断面図。

【図 8】

本発明の比較例及び実施例に係るインクジェット法で製膜された薄膜の蛍光スペクトル。(A)は比較例の蛍光スペクトルであり、(B)は実施例の蛍光スペクトルである。

【符号の説明】

- 10. ガラス基板
- 11. 透明電極ITO
- 12. SiO₂バンク
- 13. 撥インクバンク
- 14. インクジェットヘッド
- 15. 正孔注入／輸送用インク組成物
- 16. 正孔注入／輸送層
- 17. 発光層用インク組成物
- 18. 発光層
- 19. 陰極
- 20. 封止層
- 26. 正孔注入／輸送層

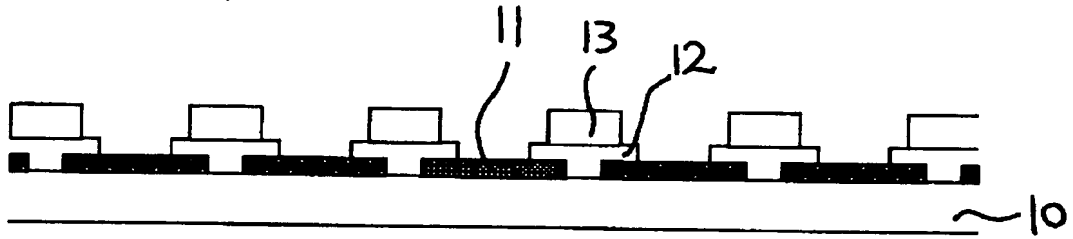
2 7 . 発 光 層

2 8 . 発 光 層 用 イ ン ク 組 成 物

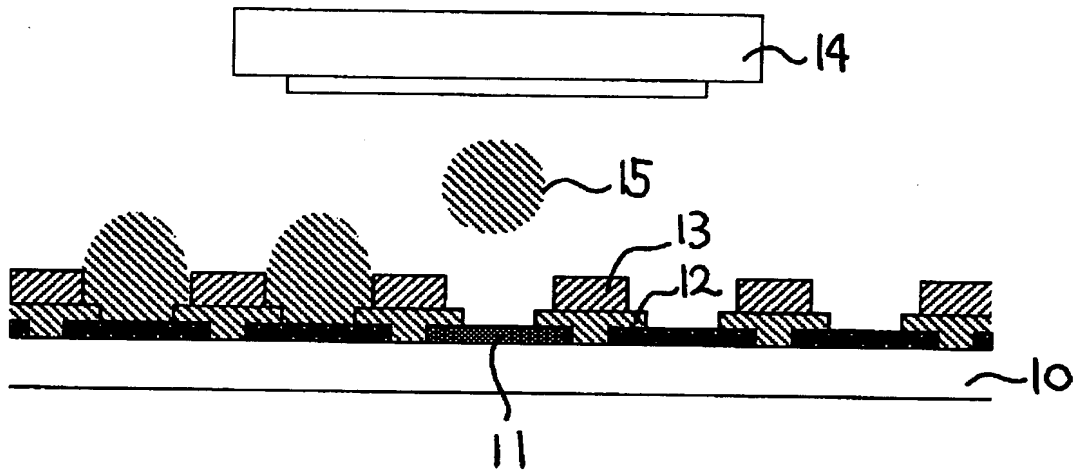
2 9 . イ ン ク ジ ェ ッ ト ヘ ッ ド

【書類名】 図面

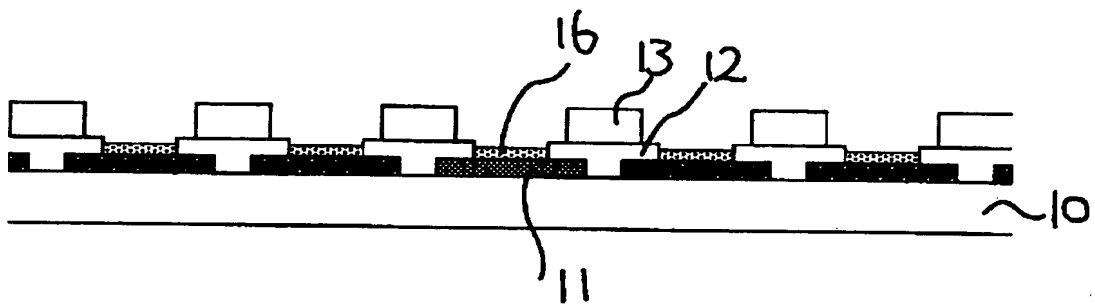
【図 1】



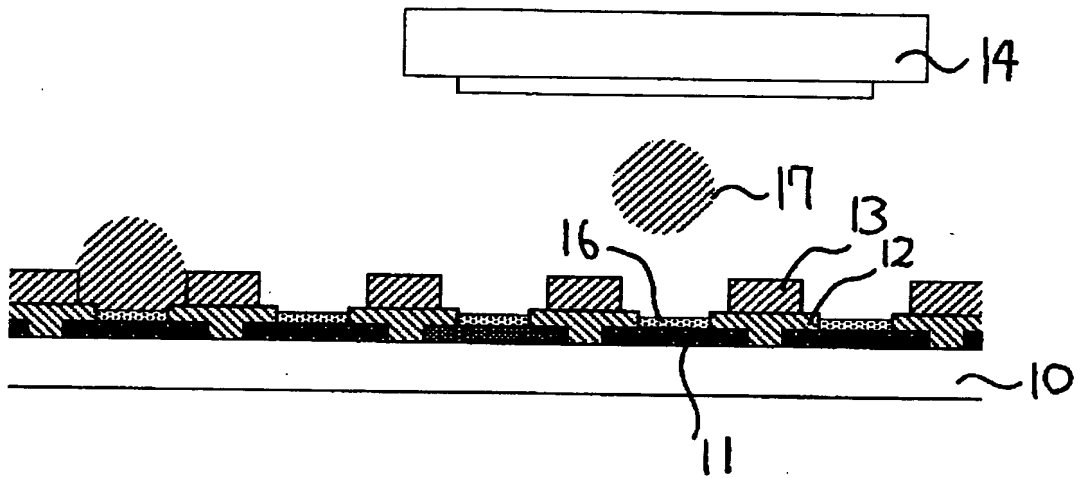
【図 2】



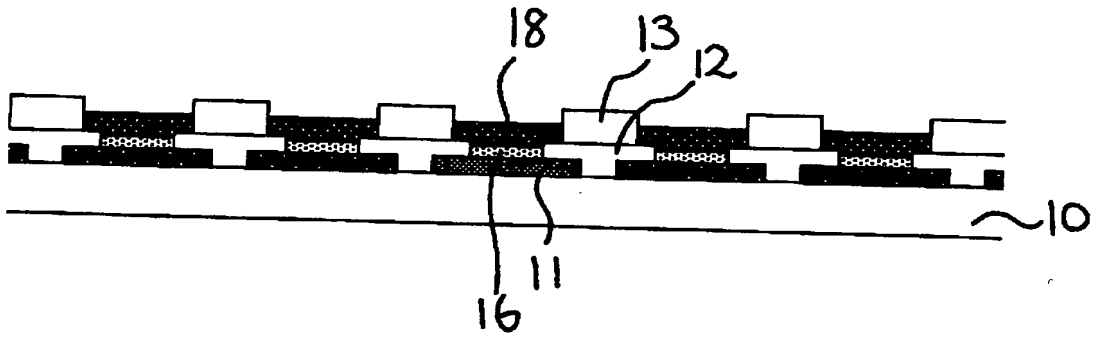
【図 3】



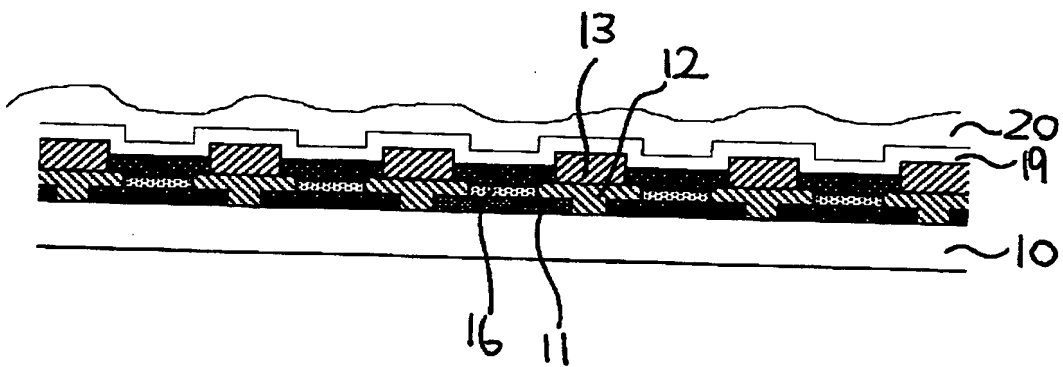
【図 4】



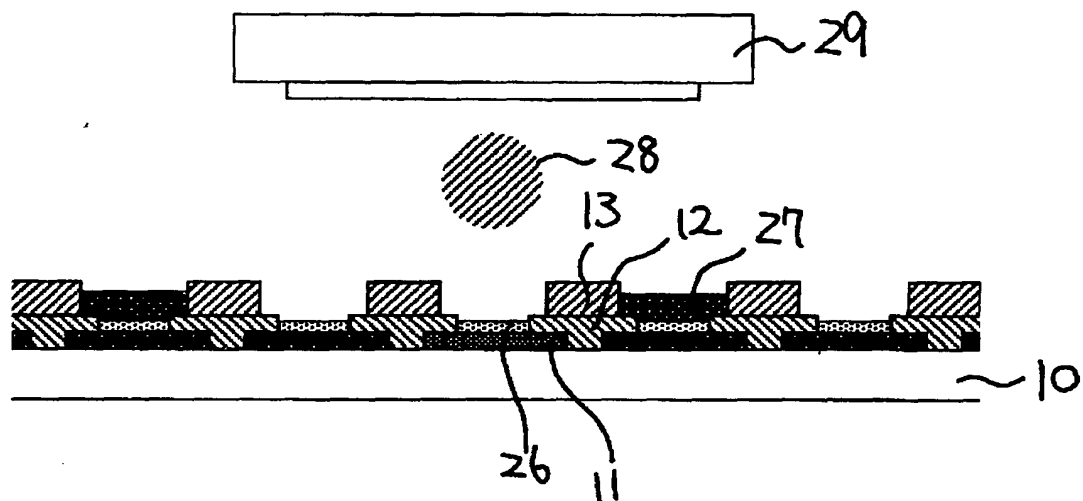
【図 5】



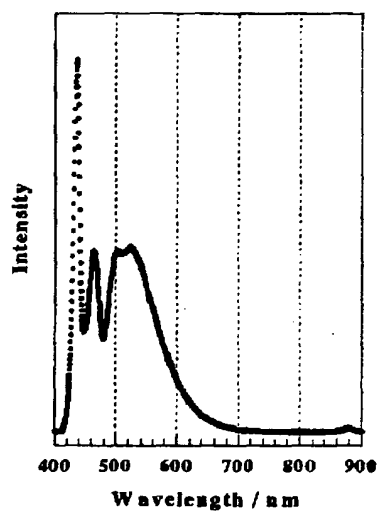
【図 6】



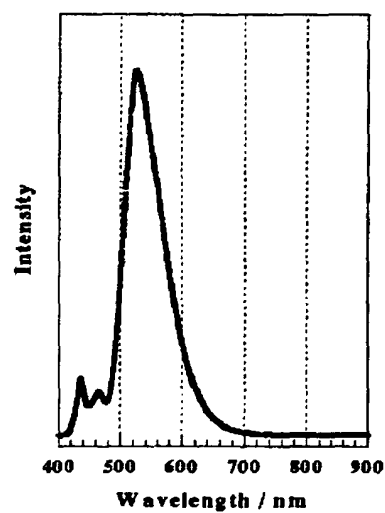
【図 7】



【図 8】



(A)



(B)

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 インクジェット法による有機 E L 素子の製造において、相分離のない均一な有機 E L 薄膜を形成する。

【解決手段】 有機 E L 材料を含むインク組成物 2 種類以上をインク吐出法により同一基板上に近接して吐出製膜する際、その吐出順序をそのインクを構成する溶質成分数が少ない順に吐出製膜する。

【選択図】 図 7

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 0 0 2 3 6 9]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 2 0 日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都新宿区西新宿 2 丁目 4 番 1 号
氏 名	セイコーエプソン株式会社